

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 3 年 5 月 2 2 日
Date of Application:

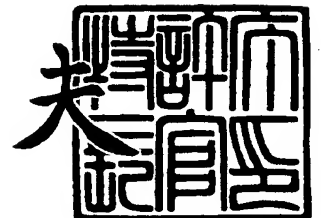
出 願 番 号 特 願 2 0 0 3 - 1 4 4 3 8 5
Application Number:
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 3 - 1 4 4 3 8 5]

出 願 人 エムアンドエス研究開発株式会社
Applicant(s):

2 0 0 4 年 5 月 1 3 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号 出証特 2 0 0 4 - 3 0 2 2 3 0 3

【書類名】 特許願

【整理番号】 H15-5-22

【あて先】 特許庁長官殿

【発明者】

【住所又は居所】 三重県津市洪見町 7 7 0 - 6 8 番地

【氏名】 中野 征孝

【特許出願人】

【識別番号】 596046509

【氏名又は名称】 エムアンドエス研究開発株式会社

【代表者】 中野 征孝

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 082165

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

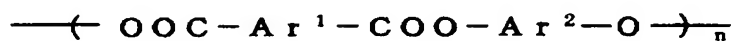
【書類名】 明細書

【発明の名称】 ポリアリレートシロキサン系樹脂を用いた樹脂付き金属箔、プリプレグ及びプリント基板。

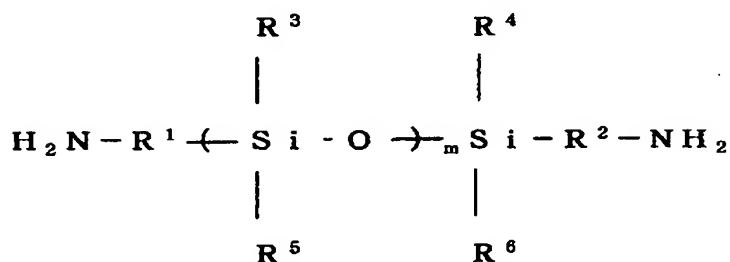
【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式化1（式中 $A r^1$ 及び $A r^2$ は、同一若しくは異なる基であって、2価の芳香族残基を示す。また、 n は1～100の整数を示す。）の繰り返し単位で表されるポリアリレート樹脂と、下記一般式化2（式中 R^1 及び R^2 は、同一若しくは異なる基であって、 $C_1 \sim C_5$ の脂肪族基又は芳香族基を示し、 R^3 、 R^4 は、同一若しくは異なる基であって、1価の脂肪族基または芳香族基を示す。 m は1以上の整数を示す。）で表される両末端ジアミノポリシロキサン化合物から、エステルーアミノ置換反応により合成される、ジアミノポリシロキサン構造の含有量が1～50重量%のポリアリレートシロキサン系樹脂を用いた樹脂付き金属箔、プリプレグ及びプリント基板。

【化1】



【化2】



【請求項2】 請求項1に記載のポリアリレートシロキサン系樹脂100重量部に対して、エポキシ化合物1～200重量部を配合したポリアリレートシロキサン系樹脂を用いた樹脂付き金属箔、プリプレグ及びプリント基板。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、ポリアリレートシロキサン系樹脂に関する。詳しくは、ポリアリレート樹脂と両末端ジアミノポリシロキサン化合物から、エステルアミノ置換反応で得られるポリアリレートシロキサン系樹脂を用いてなる樹脂付き金属箔、プリプレグ及びプリント基板に関する。

【0 0 0 2】**【従来の技術】**

近年、エレクトロニクス機器の小型化、薄肉化、軽量化が進展するにつれて、高密度実装が要求されている。そのため、プリント基板用の絶縁材料には、高耐熱性（高 T_g ）、低誘電率・誘電正接が強く望まれている。また、環境安全面からハロゲンフリーの難燃性が、更に、最近では、リサイクル性があることが理想的なプリント基板用絶縁材料であると言われている。プリント基板用絶縁材料としては、架橋エポキシ樹脂が古くから広く利用されて来たが、耐熱性の観点から、ポリイミド樹脂が、近年は多用されるようになった。しかしながら、ポリイミド樹脂は、誘電率が大きい上に、吸湿性があり、電気絶縁材料としては決して理想的な材料ではない。また、基材との十分な接着強度を得るためには 200°C 以上で長時間の熱圧着が必要であり、回路の酸化が発生し易く好ましくない。架橋ポリフェニレンオキサイド樹脂やBT樹脂等も検討されているが、一長一短があり、先に述べたような高耐熱、低誘電率・誘電正接、ハロゲンフリー難燃性、それにリサイクル性を兼ね備えた理想的な絶縁材料は未だ出現していない。

【0 0 0 3】

電気特性（低誘電率、低誘電正接）が良好で、撥水性、難燃性のあるポリシロキサン構造を耐熱性樹脂に導入して、新たな電気絶縁材料を開発する試みがある。特開平8-193139号はポリイミド樹脂に、特開平7-292342号はアラミド樹脂にポリシロキサン構造を導入して、プリント基板等の絶縁材料の開発が試みられている。また、特開昭60-141723号や特開平9-151255号はポリアリレート樹脂にシロキサン構造を導入してポリアリレート樹脂の加工性や耐磨耗性の改良が試みられている。このように各種耐熱性樹脂に、ポリシロキサン構造を導入することは公知である。しかしながら、これらポリシロキ

サン構造を樹脂に導入する従来技術は、既存の重合技術を利用して行われているために多くの問題点を有する。すなわち、シロキサン構造を有する化合物は、一般に、重合に用いられる他の反応物質（モノマー）や反応媒体（溶媒）との相溶性が悪く、高ポリシロキサン含量のものを正確に、高収率で得ることが出来なく、その結果、目的物性を有する絶縁材料を得ることが困難であった。

【0 0 0 4】

【特許文献 1】

特開平 8 - 1 9 3 1 3 9 号公報

【特許文献 2】

特開平 7 - 2 9 2 3 4 2 号公報

【特許文献 3】

特開昭 6 0 - 1 4 1 7 2 3 号公報

【特許文献 4】

特開平 9 - 1 5 1 2 5 5 号公報

【特許文献 5】

特願 2 0 0 3 - 0 9 1 9 1 9 号公報

【0 0 0 5】

【発明が解決しようとする課題】

高耐熱（高 T g）、低誘電率・誘電正接、ハロゲンフリー難燃性、それにリサイクル性を兼ね備えた理想的な絶縁材料の開発を目的として鋭意検討した結果、先に、本発明者が提案した多孔質ポリエステル樹脂とポリシロキサン化合物から、エステルーアミノ置換反応を利用してポリエステルシロキサン系樹脂を製造する方法（特願 2 0 0 3 - 0 9 1 9 1 9 号）を利用すれば、ポリアリレート樹脂から上記特性を兼ね備えた理想的なプリント基板用絶縁材料が得られることを知り、本発明に至った。

【0 0 0 6】

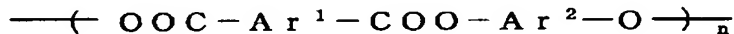
【課題を解決するための手段】

すなわち、本発明は、下記一般式化 3（化 1）（式中 A r ¹ 及び A r ² は、同一若しくは異なる基であって、2 価の芳香族残基を示す。また、n は 1 ～ 1 0 0 の

整数を示す) の繰り返し単位で表されるポリアリレート樹脂と、下記一般式化 4 (化 2) (式中 R^1 及び R^2 は、同一若しくは異なる基であって、 $C_1 \sim C_5$ の脂肪族基又は芳香族基を示し、 R^3 、 R^4 は、同一若しくは異なる基であって、1 価の脂肪族基または芳香族基を示す。 m は 1 以上の整数を示す) で表される両末端ジアミノポリシロキサン化合物から、エステルアミノ置換反応により合成される、ポリシロキサン構成含有量が 1 ~ 50 重量% のポリアリレートシロキサン系樹脂を得て、該ポリアリレートシロキサン系樹脂を導体箔やガラス繊維基材等に塗布し溶媒を除去して作成した、所謂、樹脂付き導体箔やプリプレグを積層したプリント基板、キャスト法または T ダイ法で得られた該ポリアリレートシロキサン系樹脂フィルムを導体箔と基材と積層したプリント基板を得ることである。特に、該ポリアリレートシロキサン系樹脂は、柔軟性に優れフレキシブルプリント基板用の絶縁材料として最適である。

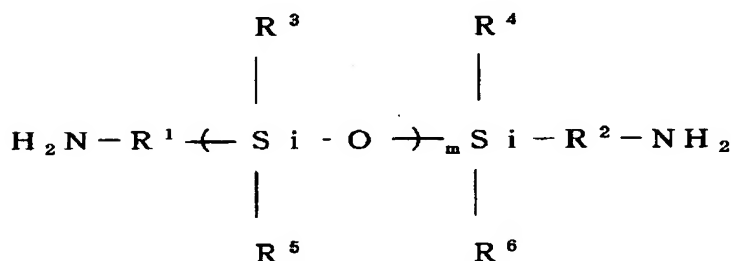
【0007】

【化 3】



【0008】

【化 4】



【0009】

また、本発明は、該ポリアリレートシロキサン系樹脂にエポキシ化合物を配合して、基材との接着性や耐熱性等の物性を更に改良したのもその要旨とする。

【0010】

【発明の実施の形態】

以下、本発明を詳しく説明する。

【0011】

本発明のポリアリレートシロキサン系樹脂とは、ポリアリレート樹脂と両末端ジアミノポリシロキサン化合物から、エステルアミノ置換反応により合成されるポリアリレート構造とポリシロキサン構造を有するブロック又はランダム共重体である。ここで言うポリアリレート樹脂は、芳香族ジカルボン酸またはその低級アルキルエステル、アリールエステル、炭酸エステル、酸ハロゲン化物と2価フェノールから重縮合反応により製造される。

【0012】

このような芳香族ジカルボン酸の具体例としては、テレフタル酸、イソフタル酸、ジフェニル-*m*, *m'*-ジカルボン酸、ジフェニル-*p*, *p'*-ジカルボン酸、ジフェニルメタン-*m*, *m'*-ジカルボン酸、ジフェニルメタン-*p*, *p'*-ジカルボン酸、ベンゾフェノン-4, 4'-ジカルボン酸、2, 6-ナフタレンジカルボン酸等を挙げることができる。これらは単独若しくは二種以上を混合して使用してもよい。また、アジピン酸、セバシン酸などの脂肪族ジカルボン酸やそれらの低級アルキルエステル、アリールエステル、炭酸エステル、酸ハロゲン化物を、共重合体の特性を損なわない範囲で混合して使用してもよい。尚、脂肪族ジカルボン酸やそのエステルを使用する場合は、全ジカルボン酸単位のうち、通常30モル%以下の範囲で使用される。

【0013】

また、2価のフェノールの具体例としては、レゾルシノール、ハイドロキノン、4, 4'-ビフェノール、2, 2'-ビフェノール、ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、ビス(2-ヒドロキシフェニル)メタン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)エーテル、ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルフィド、ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)ケトン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)ジフェニルメタン、4, 4'-(*m*-フェニレンジイソプロピリデン)ビスフェノール、4, 4'-(*p*-フェニレンジイソプロピリデン)ビスフェノール、4,

4' - (p-フェニレンジイソプロピリデン) ビス (2, 6-キシレノール)、
ビス (3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル) メタン、ビス (3-メチル-4-ヒドロキシフェニル) メタン、ビス (3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル) エーテル、ビス (3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル) スルホン、ビス (3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル) スルフィド、1, 1-ビス (4-ヒドロキシフェニル) エタン、1, 1-ビス (3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル) エタン、1, 1-ビス (4-ヒドロキシフェニル) シクロヘキサン、1, 1-ビス (4-ヒドロキシフェニル) -3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、1, 1-ビス (4-ヒドロキシフェニル) -1-フェニルエタン、2, 2-ビス (4-ヒドロキシフェニル) プロパン、4, 4' - (1-メチルベンチリデン) ビスフェノール、2, 2-ビス (4-ヒドロキシフェニル) ブタン、2, 2-ビス (3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル) プロパン、2, 2-ビス (3-メチル-4-ヒドロキシフェニル) プロパン、2, 2-ビス (3-クロロ-4-ヒドロキシフェニル) プロパン、2, 2-ビス (3, 5-ジクロロ-4-ヒドロキシフェニル) プロパン、2, 2-ビス (3-ブロモ-4-ヒドロキシフェニル) プロパン、2, 2-ビス (3, 5-ジブロモ-4-ヒドロキシフェニル) プロパン、1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロ-2, 2-ビス (4-ヒドロキシフェニル) プロパン、4, 4' -ジヒドロキシルビフェニル、3, 3', 5, 5' -テトラメチル-4, 4' -ジヒドロキシビフェニル、4, 4' -ジヒドロキシベンゾフェノンや1, 4-ジ (4-ヒドロキシフェニル) -p-メンタン、1, 4-ジ (3-メチル-4-ヒドロキシフェニル) -p-メンタン、1, 4-ジ (3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル) -p-メンタン等のテルペンジフェノール類等を挙げることができる。これらは、単独若しくは2種以上の化合物を含んで使用されてもよい。

【0014】

このようなポリアリレート樹脂として好ましいものは、芳香族ジカルボン酸成分としては、テレフタル酸とイソフタル酸の混合物、2価フェノール成分としては、2, 2-ビス (4-ヒドロキシフェニル) プロパン、2, 2-ビス (3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル) プロパン、2, 2-ビス (3-メチル-

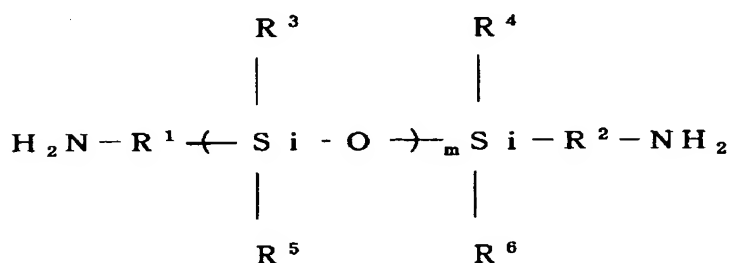
4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2,2-ビス(3-クロロ-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2,2-ビス(3,5-ジクロロ-4-ヒドロキシフェニル)プロパンを利用して、重縮合されたものである。

【0015】

次に、本発明のポリアリレート樹脂と、エステルアミノ置換反応に供される、両末端アミノポリシロキサン化合物は、下記一般式化5で示される。

【0016】

【化5】



【0017】

(式5中、R¹及びR²は、同一若しくは異なる基であって、C₁～C₅の脂肪族基又は芳香族基を示し、R³、R⁴は、同一若しくは異なる基であって、1価の脂肪族基または芳香族基を示す。mは1以上の整数を示す。)ここでR¹、R²の2価の脂肪族基としては、アルキレン基等を挙げることができ、2価の芳香族基としては、p-フェニレン基、m-フェニレン基、ジフェニレン基、ナフチレン基等を挙げることができる。また、R³及びR⁴はメチル、エチル基またはフェニル基である。ポリシロキサン構造の分子量は特に制限はないが、mが1～100であるものが好ましく、さらに好ましくは、mが2～50である。

【0018】

本発明のポリアリレートシロキサン系樹脂を調整するには、上記ポリアリレート樹脂と両末端ジアミノポリシロキサン化合物を、エステルアミノ置換反応させることにより成される。エステルアミノ置換反応は、無溶媒下で粉末又は多孔質ポリアリレート樹脂と両末端ジアミノポリシロキサン化合物を、99:1～50:50重量比で、適度な内部攪拌装置を有する反応容器に仕込み、反応副生

成物であるポリアリレート樹脂の構成成分である、2価のフェノール成分を反応系外に除去しつつ行われる。この際、反応温度は100～300℃、反応時間は1～50時間が好ましい。また、ポリアリレート樹脂と両末端ジアミノポリシロキサン化合物は、反応前に含水率が500ppm以下、好ましくは100ppm以下に乾燥することが好ましい。また、エステルアミノ置換反応は、多孔質ポリアリレート樹脂を用いたほうが、粉末状ポリアリレート樹脂を用いるより効率的に反応が進行する。

【0019】

ここで言う粉末状とは、平均粒径が1000 μ m以下、好ましくは500 μ m以下のものを言う。また、多孔質とは、表面から内部に多くの細孔を有するを言い、細孔の大きさは、平均孔径500 μ m以下、好ましくは100 μ m以下である。

【0020】

粉末状ポリアリレート樹脂を得るためには、該ポリアリレート樹脂を、適当な溶媒に溶解した溶液を、非又は貧溶媒中に投入沈殿させ、回収後乾燥させるか、機械的に粉碎することにより容易に得ることができる。また、多孔質ポリアリレート樹脂を得るためには、粉末と同様、適当な溶媒に溶解したポリアリレート樹脂溶液を、非又は貧溶媒中に投入沈殿させ、回収後乾燥させるか、該溶液を加熱又は減圧下で加熱して溶媒を除去するか、該溶液を噴霧して溶媒を除去すること等、多孔質粒子を製造する公知の方法により得ることが出来る。

【0021】

本発明のポリアリレートシロキサン系樹脂は、ポリシロキサン構造が、1～50重量%、好ましくは2～40重量%である。この範囲内であると、ポリアリレートシロキサン系樹脂のTg、誘電率、難燃性、機械的強度、撥水性（吸湿性）のバランスがプリント基板用の絶縁材料として良好に保たれる。本発明のポリアリレートシロキサン系樹脂の分子量は、塩化メチレンを用い、30℃で測定した極限粘度が、0.3dl/g以上、好ましくは0.5dl/g以上である。極限粘度が、0.3dl/g未満であると得られたポリアリレートシロキサン系樹脂の機械強度が低く、プリント基板用の絶縁材料として好ましくない。

【0022】

次に、本発明のポリアリレートシロキサン系樹脂に、エポキシ化合物を配合することは、基材への接着性、耐熱性を更に向上させ好ましい。エポキシ樹脂の具体例としては、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、フルオレンビスフェノール、4,4'-ビフェノール、2,2'-ビフェノール、ヒドロキノン、レゾルシン等の2価フェノール類から誘導される2官能性エポキシ化合物、ヒドロキシベンズアルデヒド類とフェノール類との重縮合物から誘導される多官能性エポキシ化合物、フェノールノボラック、クレゾールノボラック等のノボラック類から誘導されるノボラック型エポキシ化合物等が挙げられる。これらエポキシ化合物は単独若しくは2種類以上を組み合わせ用いても良い。

【0023】

本発明のエポキシ化合物の配合量は、ポリアリレートシロキサン系樹脂100重量部に対して、1~200重量部、好ましくは2~100重量部である。配合量が、1重量部未満であると、エポキシ化合物を配合した効果が現れず、また、200重量部以上では効果が飽和する。また、リサイクル性や難燃性等に問題を生ずる。

【0024】

本発明で、エポキシ樹脂の硬化が必要な場合、エポキシ硬化剤を配合することができる。エポキシ硬化剤の種類としては、フェノールノボラック、クレゾールノボラック、フェノール変性ポリブタジエン等のフェノール系硬化剤、ジシアンジアミド、ジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニルスルホン、ジエチレントリアミン等のアミン系硬化剤、無水ピロメリット酸、無水トリメリット酸、ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物等の酸無水物硬化剤が挙げられる。

【0025】

本発明では、エポキシ化合物以外に、樹脂の熱的安定を図るための各種熱安定剤、濡れ性を高めるための各種界面活性剤及びシランカップリング剤、難燃性を高めるための各種難燃剤等を添加することができる。また、必要に応じて、シリカ、炭酸カルシウム、マイカ、アルミナ等の無機充填剤やポリイミド樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、ポリスルホン樹脂、液晶ポ

リエステル樹脂、ポリカーボネイト樹脂、ポリフェニレンオキサイド樹脂等の樹脂類を、本発明の趣旨を逸脱しない範囲で添加しても良い。

【0026】

本発明のポリアリレートシロキサン系樹脂は、樹脂特性として適度な機械特性、高T_g、低誘電率、ハロゲンフリー難燃性、吸湿性、接着性（金属箔、ガラス繊維）、耐薬品性（酸、アルカリ）等を有する。また、熱可塑性であるため、煩わしいホットライフ管理の必要がなく、適当な溶剤に溶解して各種基材（銅箔、アルミ箔等の金属箔、ガラス繊維マット、ガラス繊維ペーパー、アラミド繊維ペーパー等）に簡単に塗布ができる。また、溶媒を用いず、Tダイ法（熔融押出法）でフィルム化も可能であり、リサイクル性と相まって、地球環境上大変好ましい材料である。このような諸特性から、本発明のポリアリレートシロキサン系樹脂は、各種樹脂付金属箔、プリプレグとして各種プリント基板用の絶縁材料として好適に用いられる。また、ガラス、シリコン基板等への接着性が優れているので、半導体用の接着剤、層間絶縁膜、保護膜、コーティング剤としても広い分野で 사용할 ことができる。

【0027】

以下に、本発明を実施例により更に詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0028】

【実施例1】

ポリアリレート樹脂として、市販の（多孔質）ポリアリレート樹脂、U-100（D）（ユニチカ株式会社製、ジカルボン酸成分；テレフタル酸：イソフタル酸の等モル混合物、ジフェノール；2,2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）プロパン、ガラス転移温度＝199℃）を使用した。両末端ジアミノポリシロキサン化合物として、市販変性シリコンオイル、KF-8012（信越化学工業株式会社製、アミノ当量＝2300）を使用した。先ず、U-100（D）は、真空乾燥器で、150℃、10時間、1ミリバール下で乾燥し、含水率を30ppmとした。KF-8012は、150℃で攪拌しつつ、真空引きをして脱水した、含水率は30ppmであった。上記乾燥U-100（D）の6kgと上記脱水KF

ー 8012 の 2 kg を、容量 10 リットルの内部にリボン式回転翼を有する円錐型反応容器に仕込み、20 回転/分で攪拌しつつ、205℃、1 ミリバールの減圧下、反応副生成物を系外に留出しながら、20 時間反応させた。白色粒状の反応生成物であるポリアリレートシロキサン樹脂、U-100 (D) /KF-8012 共重合体 A (以下、共重合体 A と略す)、7.9 kg を得た。KF-8012 の反応状況を知るために、共重合体 A を機械粉碎して、100 メッシュ金網を通した粉末 10 g を 500 g のアセトンと攪拌しつつ 10 時間混合して未反応 KF-8012 を除去した。未溶解物を濾過回収・乾燥したところ、重量の減少は 0.7 重量% であった。また、アセトン洗浄前後の共重合体 A の赤外分析と極限粘度の測定を実施したところ、赤外スペクトルには差は認められず、極限粘度（ヘキサフロロイソプロパノール、30℃）は、洗浄前 0.70 dl/g、洗浄後 0.73 dl/g であった。以上の結果から、KF-8012 は略全量 U-100 (D) に共重合したことが分かる。

次に、該共重合体 A を、塩化メチレンに溶解し、20 重量% の溶液を得た。該溶液を 38 μ m の電解銅箔（日鉱マテリアルズ社製、JTC-1.0 Oz）にバーコートで塗布、塩化メチレンを蒸発させ、厚み 20 μ m の樹脂層を付着させた樹脂付き銅箔を得た。該銅箔を 2 枚、樹脂層を内側に重ねて、220℃ で 10 分間、3 MPa で圧着張合わせてピール強度を測定した。一方、銅箔の代わりに、ポリプロピレンフィルムを用いて、該溶液を塗布、乾燥後、剥離して、厚み 20 μ m のフィルムを得た。該フィルムを 220℃、10 分間熱処理して、Tg、誘電率、吸水率、難燃性の各測定をした。結果を表 1 に纏めた。

【0029】

【表 1】

項目	測定法	
ピール強度	JIS C-6471.	0.92 kN/m
Tg	JIS C-6481 (TMA)	190℃
誘電率	JIS C-6471	3.0
誘電正接	JIS C-6471	0.003
吸水率	JIS C-6481	0.02%
難燃性	UL-94	VH-0

【0030】

【実施例2】

ポリアリレート樹脂として、PAR-4（ユニチカ株式会社製、ガラス転移温度＝240℃）を使用した。実施例1と同様に乾燥して、含水率を30ppmとした。両末端ジアミノポリオキシシロキサンとしては、実施例1と同一のKF-8012を使用した。乾燥PAR-4の30gと、脱水KF-8012の10gを100ミリリットルのガラス容器に入れ混合後、真空乾燥機にて230℃、1ミリバル下で20時間反応させた。若干茶色に着色した粒状の反応生成物であるPAR-4/KF-8012共重合体、39.5gを得た。該共重合体を実施例1と同様の方法で溶液の調整、樹脂付き銅箔とフィルムの作成を行い、評価を実施した。結果を表2に纏めた。

【0031】

【表2】

項目	測定法	
ピール強度	JIS C-6471	0.90kN/m
Tg	JIS C-6481 (TMA)	236℃
誘電率	JIS C-6471	3.0
誘電正接	JIS C-6471	0.002
吸水率	JIS C-6481	0.01%
難燃性	UL-94	VH-0

【0032】

【実施例3】

実施例1で得られた共重合体Aの16gとエピコート828（ジャパンエポキシレジン株式会社製、ビスフェノールA型エポキシ樹脂）の2g、エピコート152（ジャパンエポキシレジン株式会社製、フェノールノボラック型エポキシ樹脂）の2gを、塩化メチレン80gに溶解して、20重量%（樹脂分）の溶液を調整した。実施例1と同様の方法で樹脂付き銅箔とフィルムを作成、評価を実施した。結果を表3に纏めた。

【表 3】

項目	測定法	
ピール強度	J I S C-6471	1.26 kN/m
T _g	J I S C-6481 (TMA)	200℃
誘電率	J I S C-6471	3.2
誘電正接	J I S C-6471	0.003
吸水率	J I S C-6481	0.02%
難燃性	UL-94	VH-0

【0033】

【実施例 4】

両末端ジアミノポリシロキサン化合物として、市販変性シリコンオイル、X-22-161A（信越化学工業株式会社製、アミノ当量＝840）を使用した以外は、実施例 1 と同様の実験を行った。結果を表 4 に纏めた。

【表 4】

項目	測定法	
ピール強度	J I S C-6471	0.78 kN/m
T _g	J I S C-6481 (TMA)	190℃
誘電率	J I S C-6471	3.2
誘電正接	J I S C-6471	0.001
吸水率	J I S C-6481	0.02%
難燃性	UL-94	VH-0

【0034】

【実施例 5】

脱水KF-8012を4kg使用した以外は、実施例 1 と同様の方法で、U-100 (D) /KF-8012 共重合体B（以下、共重合体Bと略す）を得た。該共重合体Bを用い実施例 1 と同様の 20 重量%溶液を調整、樹脂付き銅箔とフィルムを作成、評価を実施した。結果を表 5 に纏めた。

【表 5】

項目	測定法	
ピール強度	J I S C-6471	0.85 kN/m
Tg	J I S C-6481 (TMA)	180℃
誘電率	J I S C-6471	2.9
誘電正接	J I S C-6471	0.001
吸水率	J I S C-6481	0.01%
難燃性	U L-94	V H-0

【0035】

【実施例 6】

実施例 3 で作製した溶液を、ガラスクロス（旭シュエーベル株式会社製、2116）にバーコーダで塗布、溶媒を蒸発除去して固形分 50 重量%のプリプレグを作製した。該プリプレグを実施例 1 で使用した電解銅箔に挟み、190℃、3 MPa（ゲージ圧）、10 分間、加圧して銅張積層板を得た。該積層板のピール強度を評価したところ 1.35 kN/m であった。

【0036】

【実施例 7】

ガラスクロスの代わりに、サーマウント N720#80（デュポン帝人アドバンスドペーパー株式会社製アラミドペーパー）を使用して同様の実験を実施した、ピール強度は 1.30 kN/m であった。

【0037】

【発明の効果】

実施例 1～7 の結果から明らかなように、本発明のポリアリレートシロキサン系樹脂は、良好な銅箔への接着強度（ピール強度）、高耐熱性（Tg）、低誘電特性、低吸湿性、難燃性を有するプリント基板用の樹脂付き金属箔、プリプレグの絶縁材料として有用であることが理解される。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 ポリアリレート樹脂と両末端ジアミノポリシロキサン化合物から、エステルーアミノ置換反応で得られるポリアリレートシロキサン系樹脂を用いてなる樹脂付き金属箔、プレプルグ及びプリント基板に関する。

【解決手段】 本発明は、ポリアリレート樹脂と、両末端ジアミノポリシロキサン化合物から、エステルーアミノ置換反応によりポリアリレートシロキサン系樹脂を得て、該ポリアリレートシロキサン系樹脂を導体箔やガラス繊維基材等に塗布し溶媒を除去して作成した樹脂付き導体箔やプリプレグを積層したプリント基板、キャスト法またはTダイ法で得られた該ポリアリレートシロキサン系樹脂のフィルムを導体箔と積層したプリント基板を得ることを特徴とする。

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 3 - 1 4 4 3 8 5
受付番号	5 0 3 0 0 8 4 8 8 7 4
書類名	特許願
担当官	第二担当上席 0 0 9 1
作成日	平成 1 5 年 5 月 2 3 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】	平成15年 5月22日
-------	-------------

次頁無

特願 2 0 0 3 - 1 4 4 3 8 5

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [5 9 6 0 4 6 5 0 9]

1. 変更年月日	1 9 9 6 年 4 月 4 日
[変更理由]	新規登録
住 所	三重県津市洪見町 7 7 0 の 6 8 番地
氏 名	エムアンドエス研究開発株式会社